

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
1. Mai 2003 (01.05.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 03/035373 A2

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: B29C 70/06

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/11704

(22) Internationales Anmeldedatum:  
18. Oktober 2002 (18.10.2002)

CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE,  
GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR,  
KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK,  
MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU,  
SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,  
US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
A 1682/2001 23. Oktober 2001 (23.10.2001) AT

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,  
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,  
TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE,  
DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT,  
SE, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA,  
GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) Anmelder und

(72) Erfinder: RETTENBACHER, Markus [AT/AT]; Un-  
terthumstrasse 138, A-5412 Puch (AT).

Veröffentlicht:

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu  
veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

(74) Anwalt: BÜCHEL, KAMINSKI & PARTNER; Paten-  
tanwälte Est., Austrasse 79, FL-9490 Vaduz (LI).

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen  
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on  
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe  
der PCT-Gazette verwiesen.

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,  
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,

(54) Title: MOULDED BODY CONTAINING PLASTIC AND REINFORCED BY NATURAL FIBRES

(54) Bezeichnung: NATURFASERVERSTÄRKTER, KUNSTSTOFFHÄLTIGER FORMKÖRPER

(57) Abstract: The invention relates to a moulded body containing plastic and reinforced by natural fibres. Said moulded body is produced from fibrous plant or animal material containing residual water, at least one thermoplastic or duroplastic material, and at least one water-binding biopolymer and/or biomonomer, by means of plastic or thermoplastic deformation at a high temperature and/or high pressure, and then by shaping, preferably by means of extrusion. In spite of a residual water content of between 0.3 and 8 wt. %, the inventive moulded body is in an unexpanded form. The invention also relates to a method for producing said moulded body.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft einen kunststoffhaltigen, naturfaserverstärkten Formkörper, der aus restwasserhaltigem pflanzlichen oder tierischen Fasermaterial, mindestens einem thermo- oder duroplastischen Kunststoff sowie mindestens einem wasserbindenden Biopolymer and/oder Biomonomer mittels plastischer oder thermoplastische Umformung bei erhöhter Temperatur und/oder erhöhtem Druck und anschließender Formgebung, vorzugsweise mittels Extrusion, erzeugt wird und der trotz eines verbleibenden Restwassergehaltes von 0,3 bis Gew. % in nicht-expandierter Form vorliegt. Die Erfindung bezieht sich weiters auf ein Verfahren zu seiner Herstellung.

WO 03/035373 A2

## Naturfaserverstärkter, kunststoffhaltiger Formkörper

### Technisches Gebiet

- 5 Die Erfindung betrifft einen kunststoffhaltigen, naturfaserverstärkten und nicht-expandierten Formkörper mit einem Restwassergehalt, sowie ein Verfahren zu seiner Herstellung.

### Hintergrund der Erfindung

10

In den letzten Jahren ist das Interesse an Naturfaserstoffen in der Kunststoffindustrie sprunghaft angestiegen. Vor allem die Verwendung von Holzfasern, Holzmehl oder Holzschnitzeln in sogenannten „wood like plastic“ oder „plastic timber“ Materialien, die mit Hilfe der Extrusionstechnik zu Profilen  
15 verarbeitet werden, hat einen wahren Boom erlebt.

Nichtsdestotrotz ist das Problem, dass Naturfaserstoffe, insbesondere Holz, selbst im lufttrockenen Zustand immer noch eine gewisse Menge an Restwasser enthalten und dadurch die Qualität von Profilen, die aus Kunststoff und Holzteilen gefertigt werden, oftmals zu wünschen übrig lässt, bisher nicht  
20 befriedigend gelöst worden. Vor allem bei Profilen, die mit einer höheren Ausstoßgeschwindigkeit gefertigt werden, treten unkontrollierbare Blasen und Expansionszonen auf, die dadurch verursacht werden, dass nach plastischer oder thermoplastischer Umformung der Rohstoffmischung bei dem nachfolgenden Ausformungsschritt der Formmasse zum Formkörper durch die dabei  
25 erfolgende Druckentlastung, z.B. am Düsenausgang einer Extrusionseinheit, das vorhandene Restwasser blitzartig aus der Formmasse verdampft. Dies führt sogar dazu, dass bei höheren Extrusionstemperaturen und -geschwindigkeiten der Zusammenhalt eines derartigen Profils nicht mehr gewährleistet ist.

30

Viele, der bis jetzt bekannt gewordenen Verfahren gehen davon aus, dass man den Wassergehalt der eingesetzten Rohstoffe, vor dem Einbringen in den

BESTÄTIGUNGSKOPIE

eigentlichen und abschliessenden Extrusionsschritt, bei dem das fertige Profil erzeugt wird, so weit wie möglich senken muss. Zu diesem Zweck werden üblicherweise die Naturstoffe entweder durch exzessives, konventionelles Trocknen vor dem Extrusionsprozess auf die Verwendung vorbereitet oder es  
5 wird versucht, durch das Hintereinanderschalten von zwei Extrusionseinheiten ein Abdampfen von Wasser zwischen den beiden Aggregaten zu erreichen. Damit verwendet man die erste Extrusionseinheit eigentlich nur als Trockner. Die nach solchen Verfahren erhaltenen, üblichen Materialien besitzen einen Wassergehalt von etwa 0,2 bis 0,5 Gew.%, sind aber noch immer expandiert  
10 und weisen gasgefüllte Hohlräume (Bläschen) auf.

Es wurden auch Verfahren vorgeschlagen, bei denen das Restwasser durch Zusatz eines synthetischen Harzes (JP 6123306) oder von anorganischen Stoffen wie CaO und CaSO<sub>4</sub> (JP 6143213, JP 52025844, JP 52025843, JP  
15 57075851 und EP 913243) durch chemische Reaktionen bis zu einem gewünschten Grad eliminiert bzw. verbraucht wird. In all diesen Fällen wird aber das noch verbleibende Restwasser im Zuge eines Extrusionsverfahrens mehr oder weniger stark expandierte Formkörper liefern.

## 20 Kurze Darstellung der Erfindung

Der Erfindung liegt nun die Aufgabe zugrunde, durch Verwendung geeigneter Zusatzstoffe, gegebenenfalls in Kombination mit einer speziell abgestimmten Verfahrensweise, zu gewährleisten, dass das in den erfindungsgemäss ein-  
25 gesetzten Ausgangsmaterialien vorhandene Restwasser zumindest teilweise gebunden und jedenfalls die Qualität des Endprodukts nicht durch allfällige Blasenbildung, unkontrollierte Expansion oder geplatzte Blasen beeinträchtigt wird.

Die Aufgabe wird von den in den Patentansprüchen gekennzeichneten  
30 Ausführungsformen gelöst, wonach ein kostengünstiger, expansions- und blasenfreier, thermo-plastischer oder duroplastischer, naturfasergefüllter, restwasserhältiger Formkörper erhältlich ist.

Erfindungsgemäß besteht der Formkörper aus einer Masse, die eine Mischung aus Partikeln mindestens eines restwasserhältigen, insbesondere pflanzlichen oder tierischen, Fasermaterials mit mindestens einer thermo- oder duroplastischen Substanz sowie einem wasserbindenden Biopolymer und/oder wasser-

5 bindenden Biomonomer ist.

Bei der Lösung der Aufgabe geht die Erfindung von dem Grundgedanken aus, dass bei der Verwendung von Naturfaserstoffen, insbesondere von Holz, zur Herstellung von Profilen mit Hilfe von plastischen oder thermoplastischen

10 Umformungsverfahren, beispielsweise mittels Extrusion, selbst bei sorgfältigster und aufwendigster Vortrocknung der verwendeten Rohstoffe, immer noch Wasser (Restwasser) in den Herstellungsprozess eingebracht wird und deshalb zwangsläufig bei abrupter Druckentlastung spontan verdampft und dabei die extrudierte Masse schäumt und expandiert.

15

Es wurde daher nach einer geeigneten Substanz, insbesondere einer Substanz mit hoher Affinität zu Naturfaserstoffen, gesucht, die dieses Wasser während des Herstellungsverfahrens so zu binden in der Lage ist, dass es bei der Ausformung der Formasse zum fertigen Formkörper zur Verdampfung nicht zur

20 Verfügung steht. Idealerweise sollte dieses Wasser aber nicht ausschließlich durch chemische Reaktionen verbraucht oder irreversibel gebunden werden, sondern sollte wenigstens zum Teil nach der Ausformung noch verfügbar sein, um eine neuerliche Wasseraufnahme des fertigen Formkörpers, z.B. Profils, durch die Umgebungsfeuchte am Ort der Anwendung und die damit einher-

25 gehenden Dimensionsänderungen so gering wie möglich zu halten. Dies würde eine zeit- und kostenaufwendige Konditionierung der fertigen Profile ersparen.

Überraschenderweise wurde gefunden, dass durch den Zusatz mindestens eines Biopolymers und/oder Biomonomers die gewünschte Wasserbindung

30 unter bestimmten Voraussetzungen erreicht werden kann und dadurch besonders formen- und dimensionstreue Formkörper – selbst bei höheren Extrusionsgeschwindigkeiten – herstellbar sind, wobei aber das gebundene

Wasser trotzdem für das Erreichen einer bestimmten relativen Feuchte im fertigen Profil wirksam ist.

Erfindungsgemäss können kompakte, nicht-expandierte Formkörper mit einem Wassergehalt von maximal 8 Gew.%, vorzugsweise von 0,3 bis 6 Gew.%, und insbesondere von 1 bis 5 Gew.%, bezogen auf seine Gesamtmasse, hergestellt werden, wenn der Restwassergehalt der Rohstoffmischung am Start des Herstellungsverfahrens ebenfalls innerhalb des Bereichs von 0,3 bis 8 Gew.% liegt oder aber wenn durch verfahrenstechnische Massnahmen gewährleistet wird, dass der Restwassergehalt der Rohstoffmischung im Zuge der plastischen oder thermoplastischen Umformung zur Formmasse auf die erwähnten Wassergehalte reduziert wird.

So kann beispielsweise der ursprüngliche Restwassergehalt der Rohstoffmischung, wenn erforderlich, während der plastischen oder thermoplastischen Umformung durch Zugabe weiterer wasserbindender oder wasserverbrauchender Substanzen und/oder durch Druckentlastung und Entgasung in der Verfahreseinheit auf die erfindungsgemäss zulässigen Werte vermindert werden. Wesentlich ist, dass die aus der plastischen oder thermoplastischen Umformung erhaltene Formmasse unmittelbar vor ihrer Ausformung zum Formkörper über einen Wassergehalt von maximal 8 Gew.% verfügt. Wird dieser Grenzwert überschritten, kann der Anteil an Biopolymer und/oder Biomonomer in der Formmasse eine im Zuge der Druckentlastung erfolgende Wasserdampfbildung im Inneren der Formmasse und damit eine Expansion des Formkörpers nicht mehr vollständig verhindern.

Durch diese Massnahmen werden Formkörper erhalten, deren Matrizen keine oder höchstens unwesentliche Anteile an gasgefüllten Hohlräumen (Bläschen) oder Expansionszonen aufweisen. Je nach Wahl des eingesetzten Fasermaterials besitzen die erfindungsgemässen Formkörper ein spezifisches Gewicht von 0,5 bis 2 g/cm<sup>3</sup>, insbesondere von 1,2 bis 1,5 g/cm<sup>3</sup>.

Unter einem "nicht-expandierten" oder "expansionsfreien" Formkörper ist im Rahmen der gegenständlichen Erfindung ein Formkörper zu verstehen, der im Zuge des Herstellungsverfahrens durch den Schritt der Ausformung weniger als 10% Volumenzuwachs erfährt, d.h. einen Expansionsindex von weniger  
5 als 1,1, insbesondere von 1,00 bis 1,09 und vorzugsweise einen Expansionsindex von 1,00 bis 1,05 aufweist.

#### Detaillierte Beschreibung der Erfindung

- 10 Erfindungsgemäß werden Biopolymere und/oder Biomonomere als „wasserbindende“ Naturstoffe zugesetzt. Hierfür sind jene Biopolymere geeignet, die bei erhöhter Temperatur mit Wasser interagieren und dieses einbauen bzw. einschließen. Dabei können Sie ihre Tertiärstruktur verändern und dadurch sogar thermoplastische Eigenschaften ausbilden, wie dies vor allem bei Stärke  
15 der Fall ist. Außerdem verbessern solche Biopolymere, wie z.B. die Stärke, die mechanischen Eigenschaften des Formkörpers. Neben isolierter Stärke können als Stärkequellen auch zerkleinerte Feldfrüchte wie Mais oder Reis in Form von Mehl zugesetzt werden. Weitere geeignete wasserbindende Biopolymere, die man aus nachwachsenden Rohstoffen gewinnen kann, sind Proteine (z.B.  
20 Gluten, Kollagen, Keratin), Lignine, Pektine und Hemicellulosen, die Wasser ähnlich binden können wie Stärke. Für die erfindungsgemässen Formkörper sind auch modifizierte Biopolymere geeignet, bevorzugt werden aber nicht-modifizierte, natürliche Biopolymere eingesetzt. Es sind auch solche Biopolymere, die synthetisch, beispielsweise in Fermentationsprozessen, erzeugt  
25 werden, geeignet, sofern sie die gleichen oder ähnliche Monomere enthalten wie die natürlichen Biopolymere und über die entsprechende Wasserbindungsfähigkeit verfügen.

Unter „wasserbindenden“ Biomonomeren sind Zucker oder zuckerähnliche,  
30 mono- bis oligomere Substanzen zu verstehen, durch deren Einsatz der Siedepunkt des Restwassers der Formmasse über die Massetemperatur hinaus erhöht wird, wodurch das Restwasser im Zuge der Druckentlastung bei der

Ausformung, beispielsweise am Düsenaustritt einer Extrusionseinheit, nicht verdampft. Geeignete Biomonomere sind beispielsweise Monosaccharide, insbesondere Glucose und Fructose, sowie Disaccharide, insbesondere Saccharose, Lactose und Maltose, weiters Dextrine, aber auch Zuckeralkohole  
5 wie Glycerin, Sorbit, Mannit, oder Xylit.

Der Rohstoffmischung wird zumindest ein Biopolymer und/oder zumindest ein Biomonomer in einer Menge von 1 bis 50 Gew.%, bevorzugt 5 bis 40 Gew.%, zugesetzt, wobei sich diese Werte im Falle einer Mischung aus unterschied-  
10 lichen Biopolymeren bzw. Biomonomeren oder einer Mischung aus Biopolymer und Biomonomer stets auf die Mischung beziehen.

Darüber hinaus können der Rohstoffmischung weitere Substanzen zugesetzt werden, die zusätzlich überschüssiges Wasser während des plastischen oder  
15 thermoplastischen Umformens entweder physikalisch oder chemisch binden können. Unter physikalischer Bindung von Wasser wird verstanden, dass man Substanzen als Zusatzstoffe verwendet, die das vorhandene Wasser als Kristallwasser einbauen, wie dies z. B. bei gebranntem Gips der Fall ist, oder Salze einsetzt, die gegenüber Wasser kolligative Eigenschaften aufweisen und  
20 zur Siedepunktserhöhung führen. Unter chemischer Bindung von Wasser wird z.B. der Einsatz von Calciumoxid verstanden, das bei Vorhandensein von Wasser in Calciumhydroxid übergeht und so Wasser direkt "verbraucht", so- dass es zur Verdampfung nicht mehr zur Verfügung steht. Zu diesen Substan- zen zählen, beispielsweise, Calciumchlorid, Kaliumcarbonat, Magnesiumoxid,  
25 Magnesiumsulfat, Kaliumhydroxid, Anhydrit, Kieselgel, Natrium-Kaliumlegierungen, Aluminiumoxid, Oxalsäure, Kaliumacetat, Lithiumchlorid und Ammoniumchlorid. Diese Zusatzstoffe werden bevorzugt in einer Menge von 1 bis 15 Gew.% der Rohstoffmischung zugefügt.

30 Gegebenenfalls können der Rohstoffmischung weitere, in der Kunststofftechnik übliche, Hilfsmittel wie Weichmacher, Haftvermittler, Farbstoffe, Gleitmittel, Stabilisatoren oder Antioxidantien in einer Menge von vorzugsweise 0,2 bis

10 Gew.%, insbesondere von 0,5 bis 8 Gew.%, bezogen auf die Gesamtmasse der Rohstoffmischung, zugegeben werden.

Als thermo- oder duroplastische Substanzen sind jene Kunststoffe als Matrix  
5 für die Masse des Formkörpers geeignet, die extrudiert, pelletiert, gepresst, pultrudiert oder spritzgegossen werden können. Der Begriff „Matrix“ steht hier für den Teil der Formmasse, der den Zusammenhalt der Naturfaserstoffe zu einem bestimmten Formteil gewährleisten soll. Geeignete thermo- oder duroplastische Substanzen sind sämtliche Kunststoffe, die auf dem Gebiet der  
10 „wood-like plastics“ bzw. „plastic timbers“ zum Einsatz kommen. Neben den wichtigsten Kunststoffen für die Holzextrusion wie Polypropylen, Polyethylen oder PVC soll hier insbesondere Melamin genannt werden, das eine hohe Affinität zu Holz aufweist, sehr abriebfest ist, ökologisch unbedenklich und hinsichtlich seiner thermoplastischen Eigenschaften variierbar ist. Die  
15 Rohstoffmischung kann 5 bis 50 Gew.%, bevorzugt aber 10 bis 35 Gew.%, an Kunststoffen enthalten.

Als wasserhältige Fasermaterialien sind im Prinzip alle Materialien pflanzlichen oder tierischen Ursprungs verwendbar, die faserige Polymere enthalten und  
20 dadurch den Formkörpern gute Festigkeitseigenschaften verleihen können. Beispiele für geeignete pflanzliche Fasermaterialien sind Holzfasern, Holzmehl oder Holzschnitzel, vorwiegend cellulosehaltige Materialien wie Stroh, Altpapier, Hanf oder Flachs. Aber auch tierisches Fasermaterial, z.B. in Form von Lederabfällen, kann zum Einsatz kommen. Durch die Fasern wird vor allem die  
25 Zugfestigkeit der erfindungsgemässen Formkörper erhöht. Die natürlichen, restwasserhaltigen Fasermaterialien sind in einer Menge von 5 bis 85 Gew.% in der Rohstoffmischung enthalten. Dass beim erfindungsgemässen Verfahren das Fasermaterial nicht völlig trocken sein muss, senkt den Gesamtenergieaufwand für das Verfahren beträchtlich.

30

Die verwendeten Naturfasermaterialien können auf Grund ihres Aufbaues poröser Natur sein. Insbesondere Holz, das zu zwei Dritteln aus Hohlräumen



besteht, behält diese Struktur durch den erfindungsgemässen Verarbeitungsprozess bei und kann so zur Reduktion der Dichte der Formkörper und der damit verbundenen Kosteneinsparung beitragen.

- 5 Die plastischen oder thermoplastischen Umformungstechniken stellen die bevorzugten Verfahren in der kunststoffverarbeitenden Industrie dar. Die gegenständliche Erfindung kann aber auf sämtliche bekannte Umformungsverfahren, beispielsweise Pultrusion, angewendet werden.
- 10 „Wood-like plastic“ oder „plastic timber“ Produkte, zu denen auch die erfindungsgemässen Formkörper gehören, werden vorwiegend durch Profilextrusion oder durch Spritzguss erzeugt.

- Es können vorab mit den verschiedenen Rohstoffen durch Extrusion, Pelletierung, oder Heissmischung Granulate erzeugt werden, die anschliessend in
- 15 einem Profilextruder oder in einer Spritzgussmaschine zu fertigen Formteilen verarbeitet werden.

- Zur Herstellung der Formkörper werden die Partikel des restwasserhältigen, pflanzlichen oder tierischen, Fasermaterials mit mindestens einer thermo- oder
- 20 duroplastischen Substanz aus der Gruppe der Kunststoffe sowie zumindest einem Biopolymer und/oder mindestens einem Biomonomer gemischt. Diese Rohstoffmischung wird dann bei einer Temperatur zumindest über der Raumtemperatur, bevorzugt bei 100 bis 300 °C, besonders bevorzugt bei 130 bis
- 25 210 °C, und/oder bei einem gegenüber dem Atmosphärendruck erhöhten Druck von bis zu 500 bar, bevorzugt bei einem Druck von 10 bis 300 bar, insbesondere von 50 bis 200 bar, zu einer plastischen Formmasse umgeformt. Die plastische Formmasse wird dann in die gewünschte Form des Formkörpers gebracht, den man nach der Abkühlung und Verfestigung der Masse erhält. Um
- 30 eine Schädigung und thermische Degradation des Biopolymers oder Biomonomers zu unterbinden, wird vorzugsweise bei Temperaturen von maximal 210°C gearbeitet.

In den letzten Jahren hat sich auch ein Verfahren etabliert, das direkt von den pulverförmigen Rohstoffen ausgehend in einem Arbeitsschritt fertige Profile erzeugt. Dieses Verfahren ist zum Beispiel in der WO 90/14935 beschrieben.

- 5 Erfindungsgemäss werden das nicht vollkommen trockene, pflanzliche Faser-  
material, beispielsweise Holzmehl, Kunststoffgranulat, Biopolymer und/oder  
Biomonomer und, gegebenenfalls, die Zusatzstoffe mit oder ohne vorher-  
gehende Mischung direkt in die Einzugsöffnung eines Extruders dosiert. Bei  
diesem Verfahren ist das Problem des Restwassers durch eingesetzte Natur-  
10 faserstoffe, insbesondere bei Holzmaterialien, am deutlichsten. Bei dieser  
sogenannten „Direktherstellung“ hat sich das erfindungsgemässe Verfahren,  
bei dem das Restwasser durch die Biopolymere und/oder Biomonomere  
abgebunden wird, deshalb besonders gut bewährt.
- 15 Durch Erwärmung und/oder Druckentlastung der Masse innerhalb der Ver-  
fahrenseinheit, beispielsweise einer Extruderschnecke, kann ein allfälliger,  
überschüssiger Wassergehalt der Masse durch Verdampfung vermindert  
werden. Der Wasserdampf wird, bevorzugt, durch sogenannte Entgasungsöff-  
nungen im Gehäuse der Verfahrenseinheit abgeführt.
- 20 Wenn verdampfbares Wasser in der Formmasse vorhanden ist und beispiels-  
weise mit einem Extruder bei 120 bis 200 Grad Celsius Masstemperatur und  
am Profildüsenaustritt mit ca. 100 bar gearbeitet wird, wird dieses Wasser –  
ohne die erfindungsgemässen Massnahmen - bei Druckabfall auf Atmosphären-  
25 druck schlagartig verdampfen und ein geschäumtes, expandiertes Produkt mit  
gasgefüllten Hohlräumen und Bläschen entstehen, wie dies beispielsweise bei  
dem Verfahren der WO 90/14935 der Fall ist. Dieser hier unerwünschte Effekt  
wird durch die gegenständliche Erfindung beseitigt und ein kompakter, nicht-  
expandierter Formkörper erzeugt, der bereits unmittelbar nach seiner Her-  
30 stellung, d.h. nach Verfestigung der unter erhöhtem Druck und/oder erhöhter  
Temperatur durch plastische oder thermoplastische Umformung einer Rohstoff-  
mischung erhaltenen und einer nachfolgenden Ausformung unterzogenen

Formmasse, einen Wassergehalt von 0,3 bis 8 Gew.%, bezogen auf seine Gesamtmasse, aufweist. Es ist ein weiteres Kennzeichen der vorliegenden Erfindung, dass der Wassergehalt des ausgeformten Produkts im wesentlichen dem Wassergehalt der Formmasse unmittelbar vor dem Ausformungsschritt  
5 entspricht. „Im wesentlichen“ heisst, dass durch den Schritt der Ausformung der Formmasse zum Formkörper, beispielsweise beim Durchtritt der Formmasse durch eine Extruderdüse und nachfolgender Druckentlastung, kein Wasserverlust durch Verdampfung aus dem Inneren der Formmasse sondern höchstens ein Abdampfen von oberflächlich anhaftender Feuchtigkeit erfolgt, was  
10 aber keinerlei negative Auswirkungen auf die vorliegende Erfindung hat.

Abhängig von den Anwendungen der Formkörper sind die Eigenschaften wie UV-Beständigkeit, Zug- und Druckfestigkeit, Farbe, Wasserbeständigkeit etc., innerhalb eines weitgehend variierbaren Bereichs steuerbar.

15 Dem Einsatz der erfindungsgemäßen Formkörpern sind kaum Grenzen gesetzt. So kann beispielsweise durch Extrusion zunächst ein lagerbares, entweder expansionsfreies oder nach dem Verfahren der WO 90/14935 expandiertes, Granulat hergestellt werden, das in weiteren Arbeitsgängen nach dem Ver-  
20 fahren der vorliegenden Erfindung aufgeschmolzen und zu Profilen, Spritz- und Druckgussstücken oder ähnlichem verarbeitet werden kann. Die Profile oder Spritzgussteile können sowohl im Innen- als auch im Aussenbereich Verwendung finden, überall dort wo heute reine Kunststoff- oder Holzteile im Einsatz sind. Beispiele für solche Formkörper sind Kanteln, Leisten, Fassadenteile,  
25 Bodendielen, Zaunelemente, Kabelkanäle, Blenden, Profile, Verkleidungen, Verpackungsmaterialien, Hohlprofile, Zierleisten oder Dockeinrichtungen.

Nachfolgend wird das erfindungsgemässe Verfahren anhand von Beispielen näher beschrieben.

30

Vergleichsbeispiel 1

In einen konischen Doppelschneckenextruder mit Entgasungsöffnungen (Firma Cincinnati Extrusion) wurden pro Stunde 80 kg Holzspäne der durchschnittlichen Größe von 1mm (Wassergehalt der Holzspäne 10

- 5 Gew.%), 18 kg Polypropylen und 2 Gew.% Haftvermittler gravimetrisch eindosiert. Die Entgasungsöffnungen des Extruders waren geschlossen. Als Formkörper wurde eine Fußbodenleiste hergestellt.

Extrusionsbedingungen:

- 10 Temperatur Einzugszone: 150 °C  
Temperatur Zone1: 160 °C  
Temperatur Zone 2: 200 °C  
Temperatur Zone 3: 200 °C  
Temperatur Zone 4: 190 °C  
15 Temperatur Düseneinlauf: 190 °C  
Düsentemperatur: 190 °C  
Direkt angeflanschte Kalibrierung: 50 °C  
Schneckentemperatur 190 °C  
Schneckendrehzahl: 35 U/min  
20 Masstemperatur: 190 °C  
Austrittsgeschwindigkeit der Leiste aus der Düse: 5,5 m/min

- Die so hergestellte Fußbodenleiste wies inakzeptable Expansionen und Blasen auf. Das am Düsen- bzw. Kalibrierungsende verdampfende Wasser verhinderte
- 25 eine formtreue Herstellung. Die Verdampfung von Wasser war so stark, dass ein Zusammenhalt des Profils nicht gewährleistet war.

Vergleichsbeispiel 2

- Die im Beispiel 1 eindosierte Rohstoffmischung von insgesamt 100 kg/h wurde
- 30 bei gleichen Extrusionsbedingungen auf 20 kg/h reduziert. Alle anderen Bedingungen wurden beibehalten. Die Austrittsgeschwindigkeit der Leiste aus der Düse betrug ca. 1 m/min.

Es konnte zumindest ein zusammenhängendes Profil erzeugt werden, wobei aber die unkontrollierten Expansionen und Blasen immer noch sehr stark auftraten.

#### 5 Vergleichsbeispiel 3

Es wurde wie im Beispiel 2 verfahren. Die einzige Änderung gegenüber Beispiel 2 war die Verwendung von Holz, das vor der Extrusion auf einen Wassergehalt von ca. 5 Gew.% getrocknet wurde. Die Düsenaustrittsgeschwindigkeit der Leiste betrug ca. 1 m/min.

- 10 Es konnte ein zusammenhängendes Profil erzeugt werden, das aber noch immer einige Expansionsstellen und Blasen aufwies.

#### Beispiel 4

Gegenüber dem Beispiel 3 wurde der Rezeptur feines Maismehl (zerkleinerte

- 15 Maiskörner mit einem Stärkegehalt von 70 Gew.%) hinzugefügt. Dies ergibt dann folgende Zusammensetzung:

- 71 Gew.% Holzspäne  
15 Gew.% Polypropylen  
20 12 Gew.% Maismehl (Wassergehalt 11 Gew.%)  
2 Gew.% Haftvermittler

- Die Extrusionsbedingungen entsprachen jenen des Beispiels 3 mit einer Rohstoffdosierungsrate von 20 kg/h in den Extruder und einer Austritts-  
25 geschwindigkeit des Profils am Düsenende von ca. 1 m/min.

Mit dieser Rezeptur und den oben beschriebenen Bedingungen konnte eine formtreue und ansprechende Fussbodenleiste hergestellt werden.

#### 30 Beispiel 5

Es wurde wie im Beispiel 4 verfahren. Die einzige Änderung gegenüber dem Beispiel 4 war vorerst die Erhöhung der Dosierungsrate der Rohstoffmischung

auf 80 kg/h. Daraus resultierte eine Profilaustrittsgeschwindigkeit von ca. 4 m/min. Bis zu dieser Geschwindigkeit konnte ein einwandfreies, blasenfreies Profil erzeugt werden.

- 5 Anschließend wurde die Dosierungsrate der Rohstoffmischung auf 100 kg/h erhöht. Dies ergab eine Profilaustrittsgeschwindigkeit von ca. 5,5 m/min.

Erste Expansionsstellen (Blasen) am fertigen Profil mussten festgestellt werden. Durch das Öffnen von Entgasungsöffnungen im ersten Drittel des

- 10 Extrusionsgehäuses und der Zudosierung von 5 Gew.% Magnesiumoxid zu der verwendeten Rohstoffmischung, konnte ein einwandfreies und formtreues Profil erzeugt werden.

#### Beispiel 6

- 15 Mit Hilfe eines Einschneckenextruders wurde ein Granulat hergestellt, das folgende Zusammensetzung hatte:

67 Gew.% Holz (Restwassergehalt ca. 11 Gew.%)

15 Gew.% Maismehl (Restwassergehalt ca. 11 Gew.%)

- 20 15 Gew.% Polypropylen

2 Gew.% Haftvermittler

1 Gew.% Titanoxyd

Die aus der obigen Rohstoffmischung (Restwassergehalt ca. 9 Gew.%)

- 25 hergestellten, fertigen Granulate wiesen unmittelbar nach der Extrusion einen Wassergehalt von 5 Gew.% auf und waren - analog zu WO 90/14935 - leicht expandiert. Das Schüttgewicht betrug 500 kg/m<sup>3</sup>.

Diese nicht weiter getrockneten Granulate wurden in einen konischen

- 30 Doppelschneckenextruder zu einem Profil extrudiert. Es wurden 100 kg expandiertes Granulat pro Stunde in den Extruder eindosiert. Die Entgasungsöffnungen des Extruders waren geschlossen.

## Extrusionsbedingungen:

- |    |                                    |          |
|----|------------------------------------|----------|
|    | Temperatur Einzugszone:            | 150° C   |
|    | Temperatur Zone 1:                 | 155° C   |
| 5  | Temperatur Zone 2:                 | 160° C   |
|    | Temperatur Zone 3:                 | 165° C   |
|    | Temperatur Zone 4:                 | 170° C   |
|    | Temperatur Düseneinlauf:           | 170° C   |
|    | Düsentemperatur:                   | 170° C   |
| 10 | Direkt angeflanschte Kalibrierung: | 40° C    |
|    | Schneckentemperatur:               | 165° C   |
|    | Schneckenfrequenz:                 | 35 U/min |
|    | Massetemperatur:                   | 165° C   |
- 15 Austrittsgeschwindigkeit der Leiste aus der Düse: ca. 5,5 m/min

Obwohl die Massetemperatur 165° C betrug, konnte auch bei einer Profilextrusionsgeschwindigkeit von ca. 5,5 m/min ein expansionsfreies (Expansionsindex < 1,05) und dimensionstreu erzeugtes Profil erhalten werden. Der

- 20 Wassergehalt des Profils entsprach dem Wassergehalt des eingesetzten Granulats.

Dieses Beispiel macht deutlich, dass bei einem Restwassergehalt der Rohstoffmischung von ca. 9 Gew.% im ersten (nicht erfindungsgemässen) Verfahrensteil ein expandierter Formkörper erhalten wurde, während im

- 25 zweiten (erfindungsgemässen) Verfahrensteil unter vergleichbaren Bedingungen und derselben Formmasse, jedoch bei auf 5 Gew.% reduziertem Restwassergehalt, ein im wesentlichen expansionsfreier Formkörper erhalten wurde.

- 30 Der Vorteil der so hergestellten Profile liegt darin, dass die Restwassergehalte der fertigen Profile schon beim Austritt aus der Wasser-Kühlstrecke annähernd den Bedingungen einer durchschnittlichen Umgebungsfeuchte entsprechen und

die Profile vor ihrem Praxiseinsatz daher nicht mehr aufwendig konditioniert werden müssen. Die Dimensionsstabilität ist bereits unmittelbar nach der Profilextrusion gegeben.

5 Beispiel 7

Es wurde wie im Beispiel 3 verfahren. Zusätzlich zu den dort beschriebenen Rohstoffen wurde in der Rezeptur Saccharose verwendet. Daraus ergibt sich folgende Rohstoffmischung:

- 10 70 Gew.% Holzspäne (Restwassergehalt 5 Gew.%)
- 18 Gew.% Polypropylen
- 10 Gew.% Saccharose
- 2 Gew.% Haftvermittler

- 15 Es konnte ein ansprechendes Profil erzeugt werden, das keine Expansionsstellen aufwies.



## Patentansprüche

1. Formkörper bestehend aus einer, nach plastischer oder thermoplastischer Umformung einer restwasserhältigen Rohstoffmischung erhaltenen und  
5 nach einem Ausformungsschritt verfestigten, Formmasse, die Partikeln mindestens eines pflanzlichen oder tierischen Fasermaterials zusammen mit mindestens einem thermo- oder duroplastischen Kunststoff sowie mindestens einem wasserbindenden Biopolymer und/oder mindestens einem wasserbindenden Biomonomer enthält, dadurch gekennzeichnet, dass er einen Wassergehalt  
10 von maximal 8 Gew.%, vorzugsweise von 0,3 bis 6 Gew.%, insbesondere von 1 bis 5 Gew.%, aufweist und nicht expandiert ist.
2. Formkörper nach Anspruch 1, mit einem spezifischen Gewicht von 0,5 bis 2 g/cm<sup>3</sup>, vorzugsweise von 1,2 bis 1,5 g/cm<sup>3</sup>.  
15
3. Formkörper nach Anspruch 1 oder 2, wobei das wasserbindende Biopolymer aus der Gruppe der Stärken, Pektine, Lignine, Proteine und Hemicellulosen ausgewählt ist.
- 20 4. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei das Biomonomer aus der Gruppe der Monosaccharide, Disaccharide, Dextrine und Zuckeralkohole ausgewählt ist.
5. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei die Rohstoff-  
25 mischung zusätzlich eine wasserbindende oder wasserverbrauchende Substanz aus der Gruppe Calciumchlorid, Calciumoxid, Kaliumcarbonat, Magnesiumoxid, Magnesiumsulfat, Kaliumhydroxid, Phosphorpentoxid, Molekularsiebe, Calciumsulfat, Anhydrit, gebrannter Gips, Kieselgel, Natrium-Kaliumlegierungen, Aluminiumoxid, Oxalsäure, Kaliumacetat, Lithiumchlorid und Ammoniumchlorid  
30 enthält.

6. Formkörper nach Anspruch 5, wobei die zusätzliche wasserbindende oder wasserverbrauchende Substanz in einer Menge von 1 bis 15 Gew.%, bezogen auf die Gesamtmasse der Rohstoffmischung, vorliegt.
- 5 7. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei der thermo- oder duroplastische Kunststoff aus der Gruppe Polyäthylen, Polypropylen, PVC, Polymethacrylat, Polystyrol, Harnstoffharz und Melamin ausgewählt ist.
8. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 7, wobei das pflanzliche  
10 Fasermaterial aus der Gruppe bestehend aus Holzfasern, Holzmehl, Holzschnitzel, cellulosehaltige Recycling-Materialien, Altpapier, Hanf, und Lederabfällen ausgewählt ist.
9. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 8, wobei er 5 bis 50  
15 Gew.% an thermo- oder duroplastischer Substanz, 1 bis 50 Gew.% an Biopolymer oder Biomonomer oder einer Mischung aus Biopolymer und Biomonomer, und 5 bis 85 Gew.% an pflanzlichem Fasermaterial enthält.
10. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 9, wobei er weitere Zusatz-  
20 stoffe aus der Gruppe der Haftvermittler, Farben, Gleitmittel, Stabilisatoren und Antioxidantien enthält.
11. Formkörper nach Anspruch 10, wobei die weiteren Zusatzstoffe in einer Menge von 0,2 bis 10 Gew.%, bezogen auf seine Gesamtmasse, enthalten  
25 sind.
12. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 11, in Form eines Granulatpartikels.
- 30 13. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 11, in Form eines technischen Elements aus der Gruppe Kantel, Leiste, Fassadenteil, Bodendiele, Zaun-

element, Kabelkanal, Blende, Profil, Verkleidung, Verpackungsmaterial, Zierleiste und Dockeinrichtung.

14. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 13, wobei er duroplastisch  
5 oder thermoplastisch ist.

15. Verfahren zur Herstellung eines Formkörpers gemäss einem der  
Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass Partikel eines pflanzlichen  
oder tierischen Fasermaterials, welches einen Restwassergehalt von vorzugs-  
10 weise 0,5 bis 15 Gew.%, insbesondere von 5 bis 11 Gew.%, aufweist, mit  
mindestens einem thermo- oder duroplastischen Kunststoff und mit mindestens  
einem wasserbindenden Biopolymer und/oder wasserbindenden Biomonomer zu  
einer Rohstoffmischung vermischt werden und die Rohstoffmischung plastisch  
oder thermoplastisch unter Temperatur- und/oder Druckerhöhung zu einer  
15 Formmasse umgeformt wird, worauf die Formmasse einer Ausformung unter-  
zogen und dabei ein expansionsfreier, restwasserhaltiger Formkörper erhalten  
wird.

16. Verfahren nach Anspruch 15, wobei die plastische oder thermoplasti-  
20 sche Umformung durch Extrusion, Pultrusion, Heissmischung, Pressen, Pelle-  
tieren oder Spritzguss erfolgt.

17. Verfahren nach Anspruch 15 oder 16, wobei die plastische oder thermo-  
plastische Umformung in einer Vorrichtung erfolgt, die mit Entgasungsöffnun-  
25 gen ausgestattet ist und wobei während der Umformung der Wassergehalt der  
Rohstoffmischung bzw. der Formmasse durch partielle Druckentlastung und  
Abzug von frei werdendem Wasserdampf durch die Entgasungsöffnungen  
vermindert wird.

30 18. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 17, wobei die plastische  
oder thermoplastische Umformung bei einer Temperatur von 100 bis 300 °C,

vorzugsweise 130 bis 210 °C, und bei einem Druck von 1 bis 500 bar, vorzugsweise 50 bis 200 bar, erfolgt.

19. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 18, wobei das Biopolymer  
5 aus der Gruppe der Stärken, Pektine, Lignine, Proteine und Hemicellulosen ausgewählt ist.

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 19, wobei das Biomonomer  
10 aus der Gruppe der Monosaccharide, Disaccharide, Dextrine und Zuckeralkohole ausgewählt ist.

21. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 20, wobei der Rohstoffmischung ausserdem eine wasserbindende oder wasserverbrauchende Substanz aus der Gruppe Calciumchlorid, Calciumoxid, Kaliumcarbonat,  
15 Magnesiumoxid, Magnesiumsulfat, Kaliumhydroxid, Phosphorpentoxid, Molekularsiebe, Calciumsulfat, Anhydrit, gebrannter Gips, Kieselgel, Natrium-Kaliumlegierungen, Aluminiumoxid, Oxalsäure, Kaliumacetat, Lithiumchlorid und Ammoniumchlorid zugesetzt wird.

20 22. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 21, wobei die zusätzliche wasserbindende oder wasserverbrauchende Substanz in einer Menge von 1 bis 15 Gew.%, bezogen auf die Gesamtmasse der Rohstoffmischung, eingesetzt  
wird.

25 23. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 22, wobei der thermo- oder duroplastische Kunststoff aus der Gruppe Polyäthylen, Polypropylen, PVC, Polymethacrylat, Polystyrol, Harnstoffharz und Melamin ausgewählt wird.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
1. Mai 2003 (01.05.2003)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2003/035373 A3**

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: **B29C 67/24**,  
47/00 // B27N 1/02, B29K 23:00, 311:00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2002/011704

(22) Internationales Anmeldedatum:  
18. Oktober 2002 (18.10.2002)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
A 1682/2001 23. Oktober 2001 (23.10.2001) AT

(71) Anmelder und  
(72) Erfinder: **RETTENBACHER, Markus** [AT/AT]; Unterthumstrasse 138, A-5412 Puch (AT).

(74) Anwalt: **BÜCHEL, KAMINSKI & PARTNER**; Patentanwälte Est., Austrasse 79, FL-9490 Vaduz (LI).

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,

CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PI, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:  
— mit internationalem Recherchenbericht

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen  
Recherchenberichts: 4. März 2004

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: MOULDED BODY CONTAINING PLASTIC AND REINFORCED BY NATURAL FIBRES

(54) Bezeichnung: NATURFASERVERSTÄRKTER, KUNSTSTOFFHÄLTIGER FORMKÖRPER

(57) Abstract: The invention relates to a moulded body containing plastic and reinforced by natural fibres. Said moulded body is produced from fibrous plant or animal material containing residual water, at least one thermoplastic or duroplastic material, and at least one water-binding biopolymer and/or biomonomer, by means of plastic or thermoplastic deformation at a high temperature and/or high pressure, and then by shaping, preferably by means of extrusion. In spite of a residual water content of between 0.3 and 8 wt. %, the inventive moulded body is in an unexpanded form. The invention also relates to a method for producing said moulded body.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft einen kunststoffhältigen, naturfaserverstärkten Formkörper, der aus restwasserhaltigem pflanzlichen oder tierischen Fasermaterial, mindestens einem thermo- oder duroplastischen Kunststoff sowie mindestens einem wasserbindenden Biopolymer and/oder Biomonomer mittels plastischer oder thermoplastische Umformung bei erhöhter Temperatur und/oder erhöhtem Druck und anschließender Formgebung, vorzugsweise mittels Extrusion, erzeugt wird und der trotz eines verbleibenden Restwassergehaltes von 0,3 bis Gew. % in nicht-expandierter Form vorliegt. Die Erfindung bezieht sich weiters auf ein Verfahren zu seiner Herstellung.

WO 2003/035373 A3

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 02/11704

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B29C67/24 B29C47/00 B27N1/02 //B29K23:00, B29K311:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B29C B27N C08L C08J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 936 245 A (DAIHO IND CO LTD) 18 August 1999 (1999-08-18) paragraph '0098!	1-4, 8, 9
A	EP 1 026 197 A (NAMBA PRESS KOGYO KK) 9 August 2000 (2000-08-09) table 1	1-23
A	WO 90 14935 A (KAINDL HOLZINDUSTRIE) 13 December 1990 (1990-12-13) cited in the application claims 1,23	1-23
	--- -/-	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the International filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search

17 January 2003

Date of mailing of the International search report

11/02/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Van Nieuwenhuize, O

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 02/11704

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 2002, no. 09, 4 September 2002 (2002-09-04) & JP 2002 144399 A (NIKKO KASEI KK), 21 May 2002 (2002-05-21) abstract	1-23
A	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 011, no. 080 (C-409), 11 March 1987 (1987-03-11) & JP 61 233061 A (CHISSO CORP), 17 October 1986 (1986-10-17) abstract	1-23
A	--- US 5 288 772 A (HON DAVID N-S) 22 February 1994 (1994-02-22)  column 4, line 27 -column 6, line 47	1-5, 7-12, 14-21,23
A	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 556 (C-664), 11 December 1989 (1989-12-11) & JP 01 230672 A (KYUZO YAMAOKA), 14 September 1989 (1989-09-14) abstract	1-3
A	--- PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 018, no. 485 (C-1248), 9 September 1994 (1994-09-09) & JP 06 157839 A (TONEN CHEM CORP), 7 June 1994 (1994-06-07) abstract	1,15
A	--- US 5 997 784 A (KARNOSKI WAYNE) 7 December 1999 (1999-12-07) claim 1; figures 1,2	1,15
A	--- DE 198 55 325 A (FABER CASTELL A W) 10 June 1999 (1999-06-10) claims 1,2	1,15
A	--- US 5 234 977 A (BELLOTTI VITTORIO ET AL) 10 August 1993 (1993-08-10) claim 1	1
A	--- JP 54 040145 A (KUROISUTAA KEMIKARUZU KK; MORIROKU SHOJI KAISHA) 28 March 1979 (1979-03-28) abstract	3
A	--- DE 199 49 975 A (UNIV DRESDEN TECH) 31 May 2001 (2001-05-31) column 2, line 67 -column 3, line 8; claim 1	3
	--- -/--	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 02/11704

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 196 35 410 A (SIEMPELKAMP GMBH & CO MASCHINE) 5 March 1998 (1998-03-05) column 3, paragraph 3 -----	3,4

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP 02/11704

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0936245	A	18-08-1999	JP 2951933 B2	20-09-1999
			JP 11226920 A	24-08-1999
			JP 2916136 B2	05-07-1999
			JP 11280000 A	12-10-1999
			JP 2960920 B2	12-10-1999
			JP 11320518 A	24-11-1999
			JP 2951955 B2	20-09-1999
			JP 2000127118 A	09-05-2000
			EP 0936245 A2	18-08-1999
			US 6254814 B1	03-07-2001
EP 1026197	A	09-08-2000	AU 4396999 A	07-02-2000
			CA 2303842 A1	27-01-2000
			EP 1026197 A1	09-08-2000
			WO 0004087 A1	27-01-2000
WO 9014935	A	13-12-1990	AT 393272 B	25-09-1991
			AT 139289 A	15-02-1991
			WO 9014935 A1	13-12-1990
			AT 94456 T	15-10-1993
			AU 5745490 A	07-01-1991
			BG 60480 B1	31-05-1995
			CA 2062789 A1	08-12-1990
			CS 9002832 A2	13-08-1991
			DD 297931 A5	30-01-1992
			DE 59002765 D1	21-10-1993
			DK 477203 T3	14-03-1994
			EP 0477203 A1	01-04-1992
			ES 2044591 T3	01-01-1994
			FI 93528 B	13-01-1995
			GR 90100426 A , B	15-11-1991
			HU 64890 A2	28-03-1994
			NO 914747 A	23-01-1992
			PL 285503 A1	11-02-1991
			PT 94291 A	31-12-1991
			SI 9011086 A , B	31-12-1994
			SK 280207 B6	10-09-1999
			RU 2105776 C1	27-02-1998
			US 6022615 A	08-02-2000
			US 5916503 A	29-06-1999
			YU 108690 A1	31-10-1991
			ZA 9004138 A	27-03-1991
JP 2002144399	A	21-05-2002	NONE	
JP 61233061 9	A		NONE	
US 5288772	A	22-02-1994	NONE	
JP 01230672 9	A		NONE	
JP 06157839 9	A		NONE	
US 5997784	A	07-12-1999	NONE	
DE 19855325	A	10-06-1999	DE 19855325 A1	10-06-1999
US 5234977	A	10-08-1993	IT 1240503 B	17-12-1993

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 02/11704

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5234977	A		AT 129268 T	15-11-1995
			AU 638598 B2	01-07-1993
			AU 8234991 A	18-02-1992
			BR 9105850 A	22-09-1992
			CA 2066039 A1	26-01-1992
			CN 1059345 A , B	11-03-1992
			CS 9102335 A3	16-09-1992
			DE 69113974 D1	23-11-1995
			DE 69113974 T2	11-04-1996
			DK 494287 T3	27-11-1995
			WO 9201743 A1	06-02-1992
			EP 0494287 A1	15-07-1992
			ES 2078536 T3	16-12-1995
			FI 921264 A	24-03-1992
			GR 3017816 T3	31-01-1996
			JP 5505416 T	12-08-1993
			NO 921139 A	24-03-1992
			PL 291195 A1	06-04-1992
			TR 25856 A	01-09-1993
			ZA 9105770 A	27-05-1992
<hr/>				
JP 54040145	A	28-03-1979	JP 1129744 C	24-12-1982
			JP 57018844 B	19-04-1982
<hr/>				
DE 19949975	A	31-05-2001	DE 19949975 A1	31-05-2001
<hr/>				
DE 19635410	A	05-03-1998	DE 19635410 A1	05-03-1998

PCT/EP 02/11704

IPK 7 B29C67/24 B29C47/00 B27N1/02 //B29K23:00,B29K311:00

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 2002, no. 09, 4. September 2002 (2002-09-04) & JP 2002 144399 A (NIKKO KASEI KK), 21. Mai 2002 (2002-05-21) Zusammenfassung	1-23
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 011, no. 080 (C-409), 11. März 1987 (1987-03-11) & JP 61 233061 A (CHISSO CORP), 17. Oktober 1986 (1986-10-17) Zusammenfassung	1-23
A	US 5 288 772 A (HON DAVID N-S) 22. Februar 1994 (1994-02-22)  Spalte 4, Zeile 27 -Spalte 6, Zeile 47	1-5, 7-12, 14-21, 23
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 556 (C-664), 11. Dezember 1989 (1989-12-11) & JP 01 230672 A (KYUZO YAMAOKA), 14. September 1989 (1989-09-14) Zusammenfassung	1-3
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 018, no. 485 (C-1248), 9. September 1994 (1994-09-09) & JP 06 157839 A (TONEN CHEM CORP), 7. Juni 1994 (1994-06-07) Zusammenfassung	1, 15
A	US 5 997 784 A (KARNOSKI WAYNE) 7. Dezember 1999 (1999-12-07) Anspruch 1; Abbildungen 1, 2	1, 15
A	DE 198 55 325 A (FABER CASTELL A W) 10. Juni 1999 (1999-06-10) Ansprüche 1, 2	1, 15
A	US 5 234 977 A (BELLOTTI VITTORIO ET AL) 10. August 1993 (1993-08-10) Anspruch 1	1
A	JP 54 040145 A (KUROISUTAA KEMIKARUZU KK; MORIROKU SHOJI KAISHA) 28. März 1979 (1979-03-28) Zusammenfassung	3
A	DE 199 49 975 A (UNIV DRESDEN TECH) 31. Mai 2001 (2001-05-31) Spalte 2, Zeile 67 -Spalte 3, Zeile 8; Anspruch 1	3

-/--

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 196 35 410 A (SIEMPELKAMP GMBH & CO MASCHINE) 5. März 1998 (1998-03-05) Spalte 3, Absatz 3	3,4

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationale Aktenzeichen

PCT/EP 02/11704

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0936245	A	18-08-1999	JP	2951933 B2	20-09-1999
			JP	11226920 A	24-08-1999
			JP	2916136 B2	05-07-1999
			JP	11280000 A	12-10-1999
			JP	2960920 B2	12-10-1999
			JP	11320518 A	24-11-1999
			JP	2951955 B2	20-09-1999
			JP	2000127118 A	09-05-2000
			EP	0936245 A2	18-08-1999
			US	6254814 B1	03-07-2001
EP 1026197	A	09-08-2000	AU	4396999 A	07-02-2000
			CA	2303842 A1	27-01-2000
			EP	1026197 A1	09-08-2000
			WO	0004087 A1	27-01-2000
WO 9014935	A	13-12-1990	AT	393272 B	25-09-1991
			AT	139289 A	15-02-1991
			WO	9014935 A1	13-12-1990
			AT	94456 T	15-10-1993
			AU	5745490 A	07-01-1991
			BG	60480 B1	31-05-1995
			CA	2062789 A1	08-12-1990
			CS	9002832 A2	13-08-1991
			DD	297931 A5	30-01-1992
			DE	59002765 D1	21-10-1993
			DK	477203 T3	14-03-1994
			EP	0477203 A1	01-04-1992
			ES	2044591 T3	01-01-1994
			FI	93528 B	13-01-1995
			GR	90100426 A ,B	15-11-1991
			HU	64890 A2	28-03-1994
			NO	914747 A	23-01-1992
			PL	285503 A1	11-02-1991
			PT	94291 A	31-12-1991
			SI	9011086 A ,B	31-12-1994
			SK	280207 B6	10-09-1999
			RU	2105776 C1	27-02-1998
			US	6022615 A	08-02-2000
			US	5916503 A	29-06-1999
			YU	108690 A1	31-10-1991
			ZA	9004138 A	27-03-1991
JP 2002144399	A	21-05-2002	KEINE		
JP 61233061 9	A		KEINE		
US 5288772	A	22-02-1994	KEINE		
JP 01230672 9	A		KEINE		
JP 06157839 9	A		KEINE		
US 5997784	A	07-12-1999	KEINE		
DE 19855325	A	10-06-1999	DE	19855325 A1	10-06-1999
US 5234977	A	10-08-1993	IT	1240503 B	17-12-1993

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationale Patentzeichen

PCT/EP 02/11704

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5234977 A		AT 129268 T	15-11-1995
		AU 638598 B2	01-07-1993
		AU 8234991 A	18-02-1992
		BR 9105850 A	22-09-1992
		CA 2066039 A1	26-01-1992
		CN 1059345 A , B	11-03-1992
		CS 9102335 A3	16-09-1992
		DE 69113974 D1	23-11-1995
		DE 69113974 T2	11-04-1996
		DK 494287 T3	27-11-1995
		WO 9201743 A1	06-02-1992
		EP 0494287 A1	15-07-1992
		ES 2078536 T3	16-12-1995
		FI 921264 A	24-03-1992
		GR 3017816 T3	31-01-1996
		JP 5505416 T	12-08-1993
		NO 921139 A	24-03-1992
		PL 291195 A1	06-04-1992
		TR 25856 A	01-09-1993
		ZA 9105770 A	27-05-1992
JP 54040145 A	28-03-1979	JP 1129744 C	24-12-1982
		JP 57018844 B	19-04-1982
DE 19949975 A	31-05-2001	DE 19949975 A1	31-05-2001
DE 19635410 A	05-03-1998	DE 19635410 A1	05-03-1998